

Coherent and incoherent light scattering in the resonance fluorescence of a single molecule

Doctoral Thesis**Author(s):**

Wrigge, Gert

Publication date:

2008

Permanent link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-005708655>

Rights / license:

In Copyright - Non-Commercial Use Permitted

DISS. ETH NO. 17684

Coherent and Incoherent Light Scattering
in the Resonance Fluorescence
of a Single Molecule

A dissertation submitted to

ETH ZURICH

for the degree of

Doctor of Sciences

presented by

GERT WRIGGE

Dipl. Phys.

Albert Ludwigs Universität, Freiburg

born 24th May 1974

citizen of Germany

accepted on the recommendation of

Prof. Vahid Sandoghdar, examiner
Prof. Atac Imamoglu, co-examiner

2008

Summary

In this dissertation the interaction of a single dye molecule in a solid matrix with a freely propagating laser beam is studied. The combination of cryogenic single molecule spectroscopy and strongly focusing with solid immersion optics leads to a system in which a single molecule can extinguish an ongoing laser beam by more than 10 %.

DBATT (dibenzanthanthrene) molecules in alcane matrices have been shown to behave as quantum mechanical two-level systems at liquid helium temperatures. Furthermore, they can easily be introduced in various optical system geometries. In this work a high refractive index hemisphere was used to focus the excitation light to less than 400 nm diameter at the sample interface. Such a setup enables the systematic study of a single solid state quantum system with strongly focused light.

A detailed experimental analysis of the resonance fluorescence of a single DBATT molecule is presented. The interference between the excitation light and coherently scattered radiation can be influenced by changing amplitude and phase of the involved fields using polarization optics. This method enables an absolute measurement of the coherent scattering from a two-level system and its dependence on the excitation light power. Furthermore, the splitting of the incoherent resonance fluorescence spectrum into the so-called Mollow triplet could be observed at strong driving fields. The agreement of both measurements with theory is excellent.

In addition, due to its interferometric origin, extinction provides a detection method that surpasses fluorescence excitation concerning signal-to-noise ratio, particularly in the limit of weak emitters or low excitation. This is demonstrated by single molecule spectroscopy with ultralow illumination of just 600 aW. A careful comparison between the two detection methods is given.

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wird die Wechselwirkung zwischen einem einzelnen Farbstoffmolekül und einem frei propagierenden Laserstrahl untersucht. Die Kombination von kryogener Einzelmolekülspektroskopie und starker Fokussierung mit Hilfe von Solid Immersion Technologie ermöglicht es, dass ein einzelnes Molekül einen freien Laserstrahl um mehr als 10 % abschwächen kann.

DBATT (Dibenzanthanthren) Moleküle können sich bei kryogenen Temperaturen wie nahezu ideale quantenmechanische Zweiniveau-Systeme verhalten. Ausserdem sind sie relativ einfach in verschiedene optische Geometrien implementierbar. In dieser Arbeit wurde mit Hilfe einer hochbrechenden hemisphärischen Solid Immersion Linse ein Anregungsfokus von unter 400 nm in der Probe erreicht. Dieser Aufbau eignet sich für eine systematische Untersuchung der Extinktion eines stark fokussierten Lichtfeldes durch ein einzelnes Festkörper Quantensystems.

In der Arbeit wird eine detaillierte Untersuchung der Resonanzfluoreszenz eines einzelnen DBATT Moleküls präsentiert. Die Interferenz zwischen Anregungslicht und elastisch gestreuter Strahlung kann durch Manipulation der Amplitude und Phase der beteiligten Lichtfelder beeinflusst werden. Diese Methode erlaubt eine absolute Bestimmung der elastischen Streurate eines Zweiniveau-Systems und ihre Abhängigkeit von der Anregungsleistung. Zudem konnte die Aufspaltung des Spektrums der inelastischen Resonanzfluoreszenz in das sogenannte Mollow-Triplett bei starker Anregung beobachtet werden. Beide Messungen zeigen exzellente Übereinstimmung mit theoretischen Ergebnissen.

Aufgrund ihres interferometrischen Ursprungs bietet Extinktion eine Detektionsmethode, die übliche Fluoreszenzanregung in punkto Signal zu Rausch Verhältnis überbieten kann, insbesondere wenn mit schwachen Emitttern oder im Limit der schwachen Anregung arbeitet. Dies wird anhand eines Versuches verdeutlicht, bei dem Einzelmolekülspektroskopie mit nur 600 aW Anregungsleistung möglich ist. Hierbei wird ein genauer Vergleich der beiden Detektionsmethoden gegeben.